



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   3 月 2 7 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 8 8 0 6 2  
Application Number:

[ST. 10/C] :            [ J P 2 0 0 3 - 0 8 8 0 6 2 ]

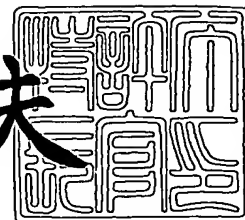
出      願      人            セイコーエプソン株式会社  
Applicant(s):



2 0 0 4 年   2 月   6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 J0096655

【提出日】 平成15年 3月27日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明の名称】 エレクトロルミネセンス素子及びその製造方法

【請求項の数】 5

【発明者】

【住所又は居所】 長野県諏訪市大和 3 丁目 3 番 5 号 セイコーエプソン株式会社内

【氏名】 深瀬 章夫

【特許出願人】

【識別番号】 000002369

【氏名又は名称】 セイコーエプソン株式会社

【代理人】

【識別番号】 100089037

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡邊 隆

【代理人】

【識別番号】 100064908

【弁理士】

【氏名又は名称】 志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】 100110364

【弁理士】

【氏名又は名称】 実広 信哉

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008707

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9910485

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 エレクトロルミネセンス素子及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 エレクトロルミネセンス素子であり、  
基板と、  
該基板表面に設けられた電極層と、  
該電極層表面に設けられた正孔注入層と、  
該正孔注入層表面に設けられた発光層と、  
該発光層表面に付着させられたアルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物と、  
該アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物の還元剤として堆積されたアルミニウムと、  
該アルミニウムの上部に設けられた透明導電膜と  
を有し、  
前記アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物が、アルミニウムに還元されてアルカリ金属またはアルカリ土類金属となり、このアルカリ金属またはアルカリ土類金属が前記発光層に対する電子注入機能を有することを特徴とするエレクトロルミネセンス素子。

【請求項2】 前記アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物の層の厚さが0.5 nm～5 nmの範囲であることを特徴とする請求項1記載のエレクトロルミネセンス素子。

【請求項3】 前記アルミニウムの層の厚さが0.5 nm～5 nmの範囲であることを特徴とする請求項1記載のエレクトロルミネセンス素子。

【請求項4】 前記アルミニウムと、前記アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物とのモル比が1：1であることを特徴とする請求項1から請求項3のいずれかに記載のエレクトロルミネセンス素子。

【請求項5】 エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、  
基板表面に電極層を設ける過程と、  
該電極層表面に正孔注入層を設ける過程と、

該正孔注入層表面に有機膜の発光層を形成する過程と、  
該発光層表面にアルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物を形成する過程と、  
該アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物の還元剤としてアルミニウム層を形成する過程と、  
該アルミニウム層の表面に透明導電膜を形成する過程と  
を有するエレクトロルミネセンス素子の製造方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0 0 0 1】

##### 【発明の属する技術分野】

本発明は、エレクトロルミネセンス素子に関し、特に素子上部から発光した光を取り出すいわゆるトップエミッション型のエレクトロルミネセンス素子の構造に関するものである。

##### 【0 0 0 2】

##### 【従来の技術】

エレクトロルミネセンス（以下、E L）素子は、表示用または照明用の発光素子として有用であり、特に、低電圧で使用可能な有機E L素子は非常に省電力に出来た表示または発光素子として多用されるようになってきている。

この有機E L素子は、通常、2つの電極に有機層が挟まれた構造で構成されている。

##### 【0 0 0 3】

通常、T F Tのガラス基板側（ガラス基板に対して接している素子面）から光を取り出す構造のいわゆるボトムエミッション型の有機E L素子が良く用いられるが、同一基板に他の回路を構成させて、高機能な素子を作成しようとする場合、ガラス基板上に形成された素子上部（ガラス基板に対して反対の素子面）から光を取り出す構造のいわゆるトップエミッション型の有機E L素子を作成する必要がある。

そして、トップエミッション型の有機E L素子は、ガラス基板上に形成される、駆動に必要な回路等が放射光の透過の障害にならず、開口率を向上させ、高輝

度・高精細が実現される。

しかしながら、この場合、素子上部に透明電極を用いる必要があるため、有機膜の上に電子注入層として、低仕事関数の金属を薄く形成し、この金属の表面に I T O を堆積させる構成が用いられている（特許文献 1 参照）。

#### 【 0 0 0 4 】

##### 【特許文献 1】

特開平 8 - 1 8 5 9 8 4 号公報

#### 【 0 0 0 5 】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記構成では、有機膜の素子のトップ（陰極側）から光を取り出すため、キャリア注入効果、すなわち電子の注入効果を持つ電子注入層として、アルカリまたはアルカリ土類金属を薄く付ける。

しかしながら、この電子注入層の抵抗が高いため、上部に透過率の高い透明導電膜（透明電極層、例えば、I T O（Indium Tin Oxide）：酸化インジウムスズ）をスパッタにより形成する。

#### 【 0 0 0 6 】

ここで、また、上記アルカリまたはアルカリ土類金属は低仕事関数の金属であるため、非常に酸化しやすい。

そのため、I T O をスパッタリングプロセスで作成するため、酸素雰囲気でのスパッタ効果により、アルカリまたはアルカリ土類金属が酸化され、電子の注入効率が低下し素子特性が劣化してしまう。

#### 【 0 0 0 7 】

本発明はこのような問題を解決するためになされたもので、その目的は、透明導電膜を含めた、発光層上部の膜の合計した透過率を、発光波長帯域（通常 4 0 0 ~ 7 0 0 n m）において 8 0 % ~ 1 0 0 % 未満に向上させ、かつ電気注入層の電子注入効率を向上させて、有効な発光強度を得ることができる、トップエミッション型のエレクトロルミネセンス素子を提供することにある。

#### 【 0 0 0 8 】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、トップエミッション型の有機エレクトロルミネセンス素子であり、基板と、該基板表面に設けられた電極層と、該電極層表面に設けられた正孔注入層と、該正孔注入層表面に設けられた発光層と、該発光層表面に付着させられたアルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物と、該アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物の還元剤として堆積されたアルミニウムと、該アルミニウムの上部に設けられた透明導電膜とを有し、前記アルカリ金属またはアルカリ土類金属の化合物が、アルミニウムに還元されてアルカリ金属またはアルカリ土類金属となり、このアルカリ金属またはアルカリ土類金属が前記発光層に対する電子注入機能を有するため、本発明で、発光層からの発光に対する透過率80%を満足させることができ、本発明で、発光層に膜厚40nmのジスチリルビフェニルを用い、正孔注入層に膜厚60nmのトリフェニルジアミンを用い、電子注入層の金属化合物として膜厚5nmのLiFを用いた場合、素子としての発光強度が $10000\text{ cd/m}^2$ であり、通常、携帯電話などでは、通常、 $100\text{ cd/m}^2$ の発光強度で実用的に用いられるため、トップエミッション素子として十分な発光強度を得ることが可能となり、同一の絶縁基板状において、他の電子回路と複合的な機能の半導体素子を、一体型として容易に形成することができる。

#### 【0009】

また、本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、金属化合物の層の上部に、還元性を有する金属を堆積させるため、光の放射側（素子のトップ）に透明導電膜をスパッタリングで堆積させる場合に、従来のように、スパッタリング時に含まれる酸素により、電子注入層として機能するアルカリ金属またはアルカリ土類金属が酸化された状態となることで発光特性が劣化することがなくなる。

#### 【0010】

本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、前記アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物の層の厚さが0.5nm～5nmの範囲であるため、発光層からの発光に対する透過率80%を、透過導電膜及びアルミニウム膜の層を含めた合計の透過率として満足させることができ、本発明で、発光層に膜厚40nmのジスチリルビフェニルを用い、電子注入層の金属化合物として膜厚5nm

の LiF を用い、膜厚 5 nm のアルミニウムの層を用いた場合、素子としての発光強度が  $10000 \text{ cd/m}^2$  であり、通常、携帯電話などでは、通常、 $100 \text{ cd/m}^2$  の発光強度で実用的に用いられるため、トップエミッション素子として十分な発光強度を得ることが可能である。

#### 【0011】

本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、前記アルミニウムの層の厚さが  $0.5 \text{ nm} \sim 5 \text{ nm}$  の範囲であるため、金属化合物に対する還元性金属として用いた場合に、発光層からの発光に対する透過率 80 % を、透過導電膜及びアルミニウム膜の層を含めた合計の透過率として満足させることができ、例えば、正孔注入層に膜厚 60 nm のトリフェニルジアミンを用い、発光層に膜厚 40 nm のジスチリルビフェニルを用い、電子注入層の金属化合物として膜厚 5 nm の LiF を用い、膜厚 5 nm のアルミニウムの層を用いた場合、素子としての発光強度が  $1000 \text{ cd/m}^2$  であり、通常、携帯電話などでは、通常、 $100 \text{ cd/m}^2$  の発光強度で実用的に用いられるため、トップエミッション素子として十分な発光強度を得ることが可能である。

#### 【0012】

本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、前記アルミニウムと、前記アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物とのモル比が 1 : 1 であるため、電子注入層としての化合物とアルミニウムとで請求項 2 及び 3 で最も膜厚の厚くなる条件（双方とも 5 nm）においても、この 2 層と透明導電膜を含めた膜の合計透過率が透過率 80 % を満足させることができ、トップエミッション素子として十分な発光強度を得ることが可能である。

#### 【0013】

本発明の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法は、トップエミッション型の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、基板表面に電極層を設ける過程と、該電極層表面に正孔注入層を設ける過程と、該正孔注入層表面に有機膜の発光層を形成する過程と、該発光層表面にアルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物を形成する過程と、該アルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物の還元剤としてアルミニウム層を形成する過程と、該アルミニウム



層の表面に透明導電膜を形成する過程とを有する。

これにより、化合物の層の上部に、還元性を有する金属を堆積させるため、光の放射側（素子のトップ）に透明導電膜をスパッタリングで堆積させる場合に、従来のように、スパッタリング時に含まれる酸素により、電子注入層として機能するアルカリ金属またはアルカリ土類金属が酸化された状態となることで発光特性が劣化することがなくなる。

#### 【0014】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の一実施形態である、トップエミッション型の有機EL素子として説明を行う。ここで、図1は上記有機EL素子の積層構造の概要を示す模式的な断面図である。

基板1は、トップエミッション型の有機EL素子であれば、不透明な半導体または絶縁性基板等である（また、点灯時に両面から発光する透明有機EL素子であれば、透明なガラス基板である）。

#### 【0015】

電極2は、基板1の表面に形成され、Al（アルミニウム）、Ag（銀）、Cu（銅）、透明伝導層（特に、透明有機EL素子の場合）等の金属が電極材料として用いられる。

正孔注入層3は、電極2から供給される正孔を、効率よく発光層4に、すなわち有機EL層に注入する。

このため、正孔注入層3は、真空準位に対して仕事関数の大きい材料、例えば、膜厚50nm～100nmのトリフェニルアミン誘導体等により形成されている。

#### 【0016】

発光層4は、有機薄膜層として、膜厚50nm程度のジスチリルビフェニル誘導体等が用いられる。

電子注入層5は、発光層4に電子を注入する層であり、金属化合物層6と還元性金属層7とが積層されて構成されている。

透明導電膜8は、配線等に用いられる透明な導電膜であり、膜厚100nm程

度のITOである。

#### 【0017】

ここで、本発明における有機EL素子の構造の特徴点は、この電子注入層にあり、電子注入層5における金属化合物層6は、電子注入効率のよい仕事関数の低い金属(Li, Na, K, Rb, Cs等のアルカリ金属及びCa, Sr, Ba等のアルカリ土類金属及びBe, Mg)を含む金属化合物、例えば、酸化リチウム(Li<sub>2</sub>O)、酸化ナトリウム(Na<sub>2</sub>O)、酸化ルビジウム(Rb<sub>2</sub>O)、酸化セシウム(Cs<sub>2</sub>O)、フッ化リチウム(LiF)、フッ化ナトリウム(NaF)、フッ化ルビジウム(RbF)、フッ化セシウム(CsF)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、フッ化マグネシウム(MgF<sub>2</sub>)、フッ化カルシウム(CaF<sub>2</sub>)等のうち1種または2種以上を含有する。これらは単独でも、2種以上を混合して用いても良く、混合して用いる場合の混合比率は任意である。

#### 【0018】

また、金属化合物層6の膜厚によっては、完全な膜形状とはならず、島状に金属化合物が成長したものとなるが、平均的な厚さが上記膜厚の範囲内にあれば、発光メカニズムにおいては全く問題とならない。

そして、還元性金属層7は、金属化合物層6の金属化合物に対して還元反応を行い、金属または金属イオンを生成する。

#### 【0019】

ここで、この還元性金属層7の膜厚を0.5nm～5nmときわめて薄くすることが、本発明においての非常に重要な特徴となる。

すなわち、アルカリ金属化合物を生成した後、アルミニウムを蒸着する過程において、アルミニウム揮発原子が上記アルカリ金属化合物を還元し、低仕事関数で電子注入層となるアルカリ金属原子を生成させる(Ono et al., 22巻、11号、1416ページ、2000年)。

#### 【0020】

例えば、金属化合物層6として、LiF(フッ化リチウム)を用い、還元性金属層7の材料としてAl(アルミニウム)を用いると、電子注入層5においては、「 $Al + LiF \rightarrow Li^+ + Al + F^-$ 」の反応が起こり、電子注入の機能を有する

、低仕事関数のアルカリ金属としてLiが生成される。

これにより、電子注入層5は、アルカリ金属が発光層4に接することで、この発光層4に対して、電子の注入を行うことが可能となる。

金属化合物層6の材料としては、LiFの他に、MgO、CaOなどを用いることができる。

#### 【0021】

ここで、電子注入層5において、還元性金属層7の膜厚は、金属化合物層6の金属化合物の還元を行うのに十分な量、すなわち同様な(1:1の)モル数があればよく、原子数が同様または大きければ、膜厚としてもほぼ同等とすることが可能である。

このため、LiFに対してAlを用いれば、膜厚としてもほぼ同等であり、アルミニウムの膜厚が5nm程度であれば、透過率が15%低下し、85%程度となり、後に説明する有機EL素子としての発光強度があれば、十分に実用が可能である。

これにより、還元性金属層7の膜厚は、アルミニウムであれば、Liの厚さ0.5nm~5nmに対応して同様の膜厚を用いるため、0.5nm~5nmの範囲となる。

#### 【0022】

また、本有機EL素子を、点灯時に両面から発光する透明有機EL素子として形成する場合、電極2には透明度を向上させるためにITOまたはSnO<sub>2</sub>を用い、基板1としては、材料として、ガラスあるいはポリエステルなどの高分子フィルムを用いて構成する。

#### 【0023】

次に、図1に示す有機EL素子を製造するための製造方法の一例を説明する。

まず、絶縁膜である基板1表面に、膜厚100nmの例えばCuの電極2をスパッタ法により堆積させる。

また、真空蒸着法により、上記電極2の表面に、正孔注入層3として膜厚60nmのトリフェニルジアミンを形成する。

さらに、この正孔注入層3の表面に、発光層4として膜厚40nmのジスチリ

ルビフェニルを形成する。

#### 【0024】

次に、電子注入層 5 の形成を行うため、発光層 4 の表面に対して、金属化合物層 6 として、膜厚 5 nm の LiF を真空蒸着法により堆積させる。

そして、この LiF の金属化合物層 6 の表面に、還元性金属層 7 として、金属化合物層 6 と同様の厚さの膜厚 5 nm の Al を真空蒸着法により形成する。

このとき、Al により、LiF が還元されることにより、Li 原子が生成されて発光層 4 表面に供給されて、低仕事関数の金属として電子注入層を形成して、発光層に対して電子注入の機能を有することとなる。

#### 【0025】

そして、還元性金属層 7 表面に、透明導電膜 8 として、膜厚 150 nm の ITO をスパッタリング法により形成して、図 1 の有機 EL 素子の構造が完成する。

#### 【0026】

次に、実験として生成した有機 EL 素子の評価について説明する。

上述したような、透明導電膜 8 を用いずに、還元性金属層 7 として膜厚 200 nm の Al を蒸着し、還元性金属層 7 と透明導電膜 8 との双方の機能を持たせ、金属化合物層 6 の膜厚、すなわち LiF の膜厚を 0.5 nm, 1 nm, 3 nm, 5 nm の 4 種類を用い、電極 2 を膜厚 100 nm の ITO で形成して、基板 1 を厚さ 1 mm の研磨ガラスの構造として作成した。

#### 【0027】

そして、LiF の膜厚を 0.5 nm, 1 nm, 3 nm, 5 nm 各々の発光強度を測定すると、それぞれが  $5000 \text{ cd/m}^2$ ,  $8000 \text{ cd/m}^2$ ,  $3000 \text{ cd/m}^2$ ,  $1000 \text{ cd/m}^2$  であった。

この結果から、還元性金属層 7 として、5 nm の膜厚の Al を還元性金属層 7 として用いたとすると、この Al の透過率が 80 % であるため、トップエミッション型として、絶縁性基板上に有機 EL 素子を作成した場合にも、十分実用的な発光強度を得ることが可能である。

#### 【0028】

以上、本発明の一実施形態を図面を参照して詳述してきたが、具体的な構成は

この実施形態に限られるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲の設計変更等があっても本発明に含まれる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の一実施形態である有機 E L 素子の積層構造の概要を示す模式的な断面図である。

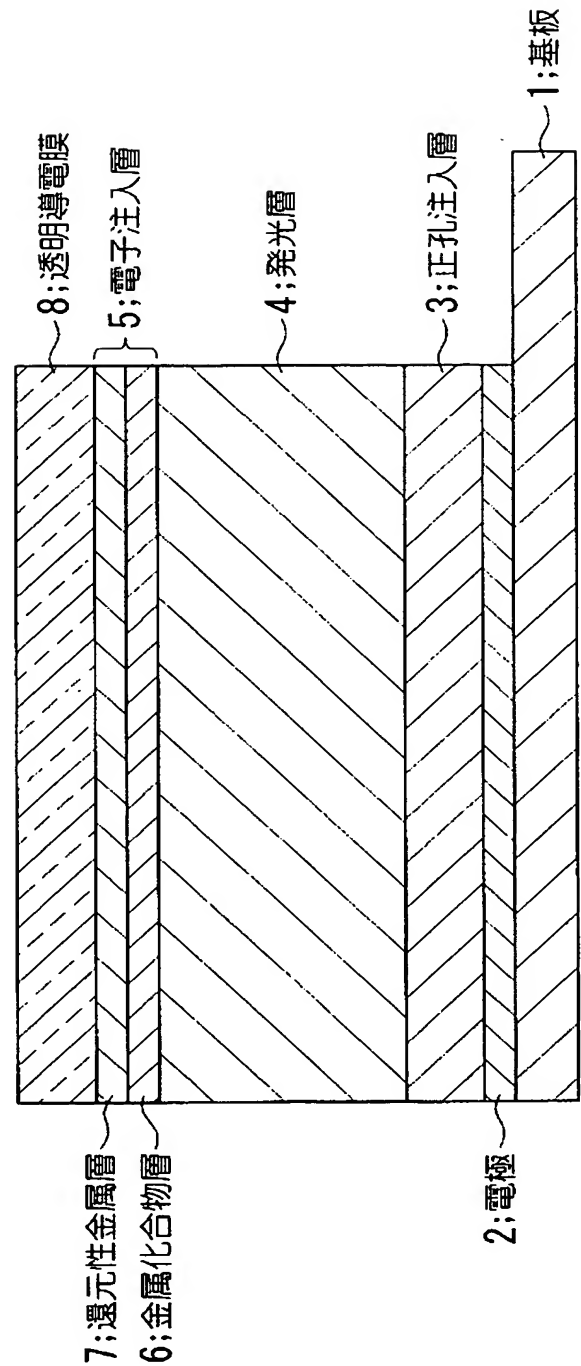
【符号の説明】

1…基板、2…電極、3…正孔注入層、4…発光層、5… 電子注入層、  
6…金属化合物層、7…還元性金属層、8…透明導電膜

【書類名】

図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 透明導電膜を含めて80%～100%未満になるよう透過率を向上させ、かつ電気注入層の電子注入効率を向上させて、有効な発光強度を得ることができる、トップエミッション型のエレクトロルミネセンス素子を提供する。

【解決手段】 本発明の有機EL素子は、トップエミッション型の有機エレクトロルミネセンス素子であり、基板1と、基板1表面に設けられた電極2と、電極2表面に設けられた正孔注入層3と、正孔注入層3表面に設けられた発光層4と、発光層4表面に付着させられたアルカリ金属またはアルカリ土類金属の金属化合物層6と、この金属化合物層6の還元剤として堆積されたアルミニウムである還元性金属層7と、還元性金属層7の上部に設けられた透明導電膜8とを有し、金属化合物層6が、還元性金属層7により還元されて金属原子となり、この金属原子が発光層4に対する電子注入機能を有する。

【選択図】 図1

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-088062
受付番号	50300505704
書類名	特許願
担当官	雨宮 正明 7743
作成日	平成15年 4月 3日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】	000002369
【住所又は居所】	東京都新宿区西新宿2丁目4番1号
【氏名又は名称】	セイコーエプソン株式会社

## 【代理人】

申請人

【識別番号】	100089037
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	渡邊 隆

## 【代理人】

【識別番号】	100064908
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	志賀 正武

## 【選任した代理人】

【識別番号】	100110364
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	実広 信哉

次頁無



特願 2 0 0 3 - 0 8 8 0 6 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 2 3 6 9 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 0 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都新宿区西新宿 2 丁目 4 番 1 号
氏 名	セイコーエプソン株式会社